WO 2005/015959

1

IAP9 Rec'd PCT/PTO 03 FEB 2006

Verwendung einer Schicht aus hydrophoben, linear oder zweidimen-5 sional polyzyklischen Aromaten als Sperrschicht oder Kapselung und mit einer derartigen Schicht aufgebaute elektrische Bauelemente mit organischen Polymeren

10

15

20

25

30

Aus organischem Material aufgebaute elektrische Bauelemente werden auf ihre Anwendungsmöglichkeiten hin zunehmend untersucht, da sie gegenüber den üblicherweise verwendeten Halbleiterbauelementen Vorteile bieten. So ist es beispielsweise bekannt, dass bestimmte organische Materialien durch eine elektrische Spannung zum Leuchten angeregt werden können. Es sind daher bereits zahlreiche Aufbauten von OLEDs (organic light emitting diodes) bekannt geworden. Dabei hat sich herausgestellt, dass die optisch aktive Schicht zweckmäßigerweise aus mehreren Schichten zusammengesetzt wird, wobei wenigstens eine Schicht speziell für die Löcherbildung (hole injection layer, HIL) bzw. für die Löcherleitung (hole transport layer, HTL) und eine andere Schicht insbesondere für die Elektronenfreisetzung (electron injection layer, EIL), für den Elektronentransport (electron transport layer, ETL) bzw. für die Lichtemission (emission layer, EML) ausgebildet sind.

Der bekannte Aufbau derartiger OLEDs sieht ein Glassubstrat vor, auf dem eine durchsichtige Anode aus einem transparenten leitenden Oxid (TCO) gebildet ist, beispielsweise aus Indium-Zinnoxid (ITO). Auf diese Anordnung werden nacheinander beispielsweise aufgebracht, eine HIL,

WO 2005/015959

20

25

30

2

HTL, EML, ETL und ElL sowie abschließend eine metallische Katode. Bei diesem Aufbau wird das Licht nach "unten", also durch das Substrat hindurch abgestrahlt.

Hinsichtlich der Materialauswahl werden OLEDs der bekannten Art 5 entweder nur aus Schichten aus verschiedenen kleinen Molekülen (SM-OLED, small molecule OLED) oder aus verschiedenen Polymeren (PM-OLED) aufgebaut. Die kleinen Moleküle werden durch Vakuumsublimation als Dünnschichten auf das Substrat nacheinander aufge-10 bracht. Polymere werden hingegen aus einer Lösung (Wasser oder organischen Lösungsmittel) verarbeitet. Polymerschichten bieten insbesondere Vorteile als HIL und HTL, da sie gute Lochtransporteigenschaften zeigen. Bekannte Moleküle, die als HILs geeignet sind, sind beispielsweise Anthracen, Tetracen und Pentacen (vgl. EP 0 278 758 15 B1).

Da die Schichten aus kleinen organischen Molekülen unproblematischer aufzubringen sind, die Schichten aus Polymeren hingegen Vorteile für die Löcherleitung bieten, ist versucht worden, eine Kombination dieser Schichten vorzunehmen. Dies gelingt bei dem herkömmlichen Aufbau einer OLED, wenn die für die Löcherleitung relevanten Polymer-Schichten HIL und HTL auf die Anode (aus ITO) nass aufgebracht und anschließend getrocknet und vakuumentgast werden. Dann ist die anschließende Aufbringung der kleinen Moleküle durch Vakuumsublimation ohne Probleme möglich.

Um eine direkte Lichtabstrahlung zu ermöglichen, wird zunehmend versucht, einen inversen Aufbau einer OLED zu realisieren, bei dem somit auf einem beliebigen Substrat die metallische Katode aufgebracht und dann zunächst die elektronenleitenden Schichten aufgebaut

3

werden, bevor die löcherleitenden Schichten aufgebracht und mit einer durchsichtigen Anode abgeschlossen werden. Für diesen Aufbau ist eine Hybridtechnik nicht möglich, da bei dem nassen Aufbau der löcherleitenden Schichten HTL und HIL die kleinen Moleküle der elektronenleitenden Schichten durch das Lösungs- bzw. Dispergiermittel, aus dem heraus die Polymere für HTL und/oder HIL aufgebracht werden (z.B. Wasser), angegriffen und in ihrer elektrischen Qualität unbrauchbar werden würden, auch die metallische Katode ist feuchtigkeitsempfindlich und kann durch Kontakt mit Wasser zerstört werden.

10

5

,这种种种,我们也是一个人,也是一个人,我们就是一个人,我们们也是一个人,我们们也是一个人,我们们也是一个人,也是一个人,也是一个人,我们们也是一个人,我们们也

Es ist ferner bekannt, dass die Schichten der OLEDs stark feuchteanfällig sind, sodass die OLEDs nach der Aufbringung der zweiten Elektrode so verkapselt werden, dass lediglich Anschlüsse der Elektroden zugänglich sind.

15

Die Anfälligkeit organischer Materialien gegen Feuchtigkeit stellt auch ein Problem bei anderen elektrischen Bauelementen dar.

Die oben vorgenommene Unterscheidung zwischen "kleinen Molekü20 len" und Polymeren ist in der Fachwelt akzeptiert und üblich. "Kleine
Moleküle" sind daher solche organischen Moleküle, die nicht durch
Polymerisation Ketten oder Netze bilden.

Der vorliegenden Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, die durch die Feuchteempfindlichkeit und durch Diffusionserscheinungen bestehenden Beschränkungen für den Aufbau von elektrischen Bauelementen aus organischen Substanzen zu beseitigen oder zumindest zu verringern.

5

10

15

WO 2005/015959

0

4

Die Lösung dieser Aufgabe gelingt überraschend durch die Verwendung einer Schicht aus hydrophoben, linear oder zweidimensional polyzyklischen Aromaten mit drei bis zwölf Ringstrukturen, einschließlich metallhaltigen oder metallfreien Phthalocyaninen, die als Restgruppen - H und/oder -F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe aufweisen, als Sperrschicht in oder als Kapselung von mit organischen Schichten aufgebauten elektrischen Bauelementen.

Der vorliegenden Erfindung liegt die Erkenntnis zugrunde, dass die erwähnten Schichten, insbesondere und vorzugsweise aus Pentacen, nicht nur eine funktionale Schicht beim Aufbau von organischen elektrischen Bauelementen sein kann, sondern unerwartet Sperrschichteigenschaften aufweist, die es ermöglichen, die entsprechende Schicht als Sperrschicht gegen Feuchtigkeit zum Schutz der unterliegenden Schichten sowie der metallischen Katode zu verwenden.

Die erfindungsgemäß verwendete Schicht ist vorzugsweise aus einem Material aus der Gruppe Anthracen, Phenanthren, Tetracen, Chrysen, Pentacen, Hexacen, Perylen, Triphenylen, Coronen,

m-Naphthodianthracen, m-Anthracenoditetracen,
m-Tetracenodipentacen, Pyren, Benzopyren, Ovalen, Violanthren
sowie Derivaten der vorgenannten Stoffe mit Restgruppen -H und/oder
-F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe
gebildet ist.

25

Alternativ hierzu kann die Schicht aus einem metallhaltigen Phthalocyanin der Formel 5

10

WO 2005/015959 PCT/DE2004/001775

5

mit M<sup>1</sup> = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V<sup>=</sup>O, Ti<sup>=</sup>O gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

15 Alternativ kann die Schicht aus einem metallfreien Phthalocyanin der Formel

25

20

mit M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni,  $V^{=}O$ ,  $Ti^{=}O$  gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

PCT/DE2004/001775

6

In allen Fällen ist es bevorzugt, wenn die Anzahl der Ringstrukturen des Aromaten zwischen 5 und 10, vorzugsweise zwischen 4 und 10, bevorzugt zwischen 5 und 8, liegt.

Aufgrund der dargestellten Verwendung der näher erläuterten Schicht als Sperrschicht oder Verkapselung lassen sich organische elektrische Bauelemente aufbauen, bei denen die Schicht sowohl eine elektrische Funktion erfüllt als auch als Sperrschicht oder als in-situ-Verkapselung aufgebaut ist.

10

15

20

25

30

5

Demgemäß ist erfindungsgemäß eine organische Leuchtdiode mit einem Substrat, einer auf das Substrat aufgebrachten ersten Elektrode, wenigstens einer elektroneninjizierenden und transportierenden Zone, wenigstens einer löcherinjizierenden und transportierenden Zone und einer zweiten Elektrode dadurch gekennzeichnet, dass die löcherinjizierende und transportierende Zone eine Schicht aus linear oder zweidimensional verketteten polyzyklischen Aromaten mit 3 bis 12 Ringstrukturen, einschließlich metallhaltige oder metallfreie Phthalocyanine, die als Restgruppen –H und/oder –F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe aufweist, wobei diese Schicht als Verkapselungsschicht ausgebildet ist.

Erfindungsgemäß wird mit der genannten Schicht nicht nur eine Funktionsschicht gebildet, sondern auch eine in-situ-Verkapselung durchgeführt. Hierfür ist der Schichtaufbau so geführt, dass die Schicht alle vorher aufgebauten, feuchteempfindlichen Schichten überdeckt.

Die Erfindung ermöglicht ferner eine organische Leuchtdiode mit einem Substrat, einer auf das Substrat aufgebrachten Katode, wenigstens einer elektroneninjizierenden und transportierenden Zone, wenigstens

5

PCT/DE2004/001775

7

einer löcherinjizierenden und transportierenden Zone und einer lichtdurchlässigen Anode, wobei die elektroneninjizierende und transportierende Zone mit kleinen Molekülen aufgebaut ist und sich daran eine
Schicht aus linear oder zweidimensional verketteten polyzyklischen
Aromaten mit 3 bis 12 Ringstrukturen, einschließlich metallhaltige oder metallfreie Phthalocyanine, die als Restgruppen –H und/oder –F,
Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe zur
Anode hin anschließt.

Die vorliegende Erfindung ermöglicht daher auch eine in einer Hybridstruktur aufgebaute organische Leuchtdiode (OLED), bei der die Abstrahlung "nach oben", also von der Substratseite weg, erfolgt. Demzufolge ermöglicht die Erfindung einen optimierten Aufbau einer nach oben abstrahlenden OLED, da die genannte Schicht als wirksame Sperrschicht fungiert, die die Diffusion von Wasser in die darunter liegenden Schichten verhindert. Demgemäß kann auf die genannte Schicht vorzugsweise ein wässriger Polymerfilm, beispielsweise aus PDOT:PSS, wässrig als eine zusätzliche löcherinjizierende Schicht zur Anode hin aufgebracht werden, um die erforderliche Betriebsspannung der OLED zu verringern.

Beispiele für Stoffe, aus denen die erfindungsgemäß als Sperrschicht oder Verkapselung dienende Schicht gebildet sein kann, sind:

PCT/DE2004/001775

Hexacene

930.Jan. 2006 14:19

9

PCT/DE2004/001775

Perylene

Triphenylene

15

Coronene

20

25

m-Naphthodianthracene

PCT/DE2004/001775

. 10

m-Anthracenoditetracene

m-Tetracenodipentacena

20 R R R

Pyrene

25

R
R
R
R
R
R
R
R
R

Benzopyrene

PCT/DE2004/001775

11

Ovalene

Violanthrene

15

5

R = H und/oder F und/oder Alkyl, Aryl, und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe

20

PCT/DE2004/001775

12

# **Phthalocyanine**

metallhaltige

5

10

M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V=O, Tr=O

15 metallfreie

20

25

R = H und/oder F und/oder Alkyl, Aryl, und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe

13

Der Klarheit halber ist darauf hinzuweisen, dass alle aufgezählten Moleküle dieser Schicht, auch wenn bis zu 12 Ringstrukturen in ihnen enthalten sind, "kleine Moleküle" im Sinne dieser Erfindung sind, da keine Polymerisation vorliegt.

5

Die Erfindung soll im Folgenden anhand von in der Zeichnung dargestellten Ausführungsbeispielen näher erläutert werden. Es zeigen:

10

Figur 1

einen schematischen Aufbau einer "nach oben" emittierenden OLED mit einer HIL-Schicht als Verkapselungsschicht, wobei alle Schichten als SM-Schichten aufgebaut sind.

Figur 2

15

20

25

einen schematischen Aufbau einer OLED mit einem Hybridaufbau aus SM-Schichten und einer Polymerschicht.

Die in den Figuren 1 und 2 dargestellten OLEDs strahlen nach oben ab. Sie bestehen aus einem Substrat 1 auf das eine Metallschicht als Katode 2 aufgebracht ist. Eine geeignete Metallschicht ist Magnesium oder eine Legierung aus LiF/Al.

An die Katode 2 schließt sich eine elektroneninjizierende Schicht ElL an, die in bekannter Weise freie Elektronen bereitstellt. Diese rekombinieren mit Löchern aus den unten näher erläuterten übrigen Schichten in einer Emissionsschicht EML, in der durch die Rekombination Elektrolumineszenz entsteht, also Licht ausgesandt wird.

Oberhalb der Emissionsschicht EML befinden sich ggf. mehrere löcher-30 leitende Schichten HTLs. Diese werden abgedeckt durch eine löcherin-

**WO** 2005/015959

5

10

15

Nr.5090 S. 18/49

14

jizierende Schicht HIL 1, die in dem dargestellten Ausführungsbeispiel aus Pentacen gebildet sein kann. Diese Schicht wird dadurch als Verkapselungsschicht verwendet, dass sie in der realen Konstruktion so ausgebildet wird, dass sie die übrigen, darunter liegenden Schichten abdeckt. An die HIL 1 schließt sich eine durchsichtige Anode 3 an, die vorzugsweise aus Indium-Zinnoxid besteht. Die Schichten ElL, EML, HTL und HIL 1 sind in bekannter Weise als dünne Schichten ausgebildet und emittieren Licht, wenn an die Anode 3 eine gegenüber der Katode 2 positive Spannung ausreichender Größe angelegt wird. Die nach oben gerichtete Emission ist in Figur 1 durch einen Pfeil verdeutlicht.

Durch die Verwendung der Schicht HIL 1 als Verkapselungsschicht erübrigt sich eine sonst erforderliche nachträglich (ex-situ) Verkapselung der OLED. Die erfindungsgemäße OLED gemäß Figur 1 wird daher in situ verkapselt, sodass eine nachträgliche Verkapselung durch die herabgesetzten Anforderungen im Hinblick auf ihre Durchlässigkeit gegenüber Wasserdampf in wesentlich einfacherer Weise durchgeführt werden kann.

20

25

Bei der in Figur 2 dargestellten OLED ist ein prinzipiell gleicher Aufbau vorgesehen, wobei die Schichten EIL, EML, HTL und HIL 1 alle aus kleinen Molekülen (als SM-Schichten) bestehen. Zwischen der erfindungsgemäß als Sperrschicht eingesetzten Schicht HIL 1 und der Anode 3 ist noch eine Schicht HIL 2 aufgebracht, die als Polymerschicht, beispielsweise PDOT, ausgebildet ist. Diese Polymerschicht HIL 2 wird nass aufgebracht, schädigt jedoch wegen der Sperrschichtwirkung der HIL 1 die darunter liegenden feuchteempfindlichen Schichten HTL, EML und EIL, nicht.

PCT/DE2004/001775

15

Die Schicht HIL 2 ermöglicht eine Herabsetzung der Arbeitsspannung zwischen Anode 3 und Katode 2 bzw. erhöht den Wirkungsgrad der Emission, die auch beim Ausführungsbeispiel gemäß Figur 2 nach oben erfolgt.

5

Da die Polymerschicht HIL 2 nicht feuchteempfindlich ist, kann auch in diesem Ausführungsbeispiel die Schicht HIL 1 als Verkapselungsschicht ausgebildet sein, also die darunter liegenden Schichten HTL, EML und EIL überdecken.

10

15

20

25

30

**3**5

16

#### Ansprüche

- Verwendung einer Schicht (HIL 1) aus einem hydrophoben, linear oder zweidimensional polyzyklischen Aromaten mit 3 bis 12
  Ringstrukturen, einschließlich metallhaltigen oder metallfreien
  Phthalocyaninen, die als Restgruppen -H und/oder -F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe
  aufweisen, als Sperrschicht in oder als Verkapselung von mit
  organischen Schichten aufgebauten elektrischen Bauelementen.
- Verwendung nach Anspruch 1, wobei die Schicht aus einem Material aus der Gruppe Anthracen, Phenanthren, Tetracen, Chrysen, Pentacen, Hexacen, Perylen, Triphenylen, Coronen, m-Naphthodianthracen, m-Anthracenoditetracen, m-Tetracenodipentacen, Pyren, Benzopyren, Ovalen, Violanthren sowie Derivaten der vorgenannten Stoffe, mit Restgruppen -H und/oder -F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe gebildet ist.

20

 Verwendung nach Anspruch 1, wobei die Schicht aus einem metallhaltigen Phthalocyanin der Formel

25

WO 2005/015959

17

mit M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V=0, Ti=0 gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

5

Verwendung nach Anspruch 1, wobei die Schicht aus einem 4. metallfreien Phthalocyanin der Formel

10

15

mit M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V=0, Ti=0 gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

25

30

20

Organische Leuchtdiode mit einem Substrat (1), einer auf das 5. Substrat (1) aufgebrachten ersten Elektrode (2), wenigstens einer elektroneninjizierenden und transportierenden Zone (EIL), wenigstens einer löcherinjizierenden und transportierenden Zone (HTL, HIL) und einer zweiten Elektrode (3), dadurch gekennzeichnet, dass die löcherinjizierende und transportierende Zone eine Schicht (HIL 1) aus linear oder zweidimensional verketteten polyzyklischen Aromaten mit 3 bis 12 Ringstrukturen einschließ-

18

lich metallhaltigen oder metallfreien Phthalocyaninen, die als Restgruppen –H und/oder –F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe aufweisen, wobei diese Schicht (HIL 1) als Verkapselungsschicht ausgebildet ist.

5

30.Jan. 2006 14:20

- 6. Organische Leuchtdiode mit einem Substrat (1), einer auf das Substrat (1), einer auf das Substrat (1) aufgebrachten Katode (2), wenigstens einer elektronenijizierenden und transportierenden Zone (EIL), wenigstens einer löcherinjizierenden und trans-10 portierenden Zone (HTL, HIL) und einer lichtdurchlässigen Anode (3), dadurch gekennzeichnet, dass die elektroneninjizierende und transportierende Zone (EIL) mit kleinen Molekülen aufgebaut ist und dass sich daran eine Schicht aus linear oder zweidimensional verketteten polyzyklischen Aromaten mit 3 bis 12 Ringstruk-15 turen, einschließlich metallhaltigen oder metallfreien Phthalocyaninen, die als Restgruppen -H und/oder -F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe zur Anode (3) hin anschließt.
- Organische Leuchtdiode nach Anspruch 5 oder 6, bei der das Material der Schicht aus der Gruppe Anthracen, Phenanthren, Tetracen, Chrysen, Pentacen, Hexacen, Perylen, Triphenylen, Coronen, m-Naphthodianthracen, m-Anthracenoditetracen, m-Tetracenodipentacen, Pyren, Benzopyren, Ovalen, Violanthren sowie Derivaten der vorgenannten Stoffe mit Restgruppen -H
  - sowie Derivaten der vorgenannten Stoffe mit Restgruppen -H und/oder -F, Alkylgruppen, Arylgruppen und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe gebildet ist.

5

10

15

20

25

19

8. Organische Leuchtdiode nach Anspruch 5 oder 6, bei der die Schicht aus einem metallhaltigen Phthalocyanin der Formel

mit M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V=O, Ti=O gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

 Organische Leuchtdiode nach Anspruch 5 oder 6, bei der die Schicht aus einem metallfreien Phthalocyanin der Formel

PCT/DE2004/001775

20

mit M = Cu, Zn, Fe, Mn, Co, Ni, V\*O, Ti\*O gebildet wird und jedes R ein -H und/oder -F und/oder eine Alkylgruppe und/oder eine Arylgruppe und/oder ein fluorierter Kohlenwasserstoff sein kann.

5

10. Organische Leuchtdiode nach einem der Ansprüche 5 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen die Schicht (HIL 1) und der zweiten Elektrode (3) eine aus wässriger Lösung aufgebrachte, löcherinjizierende und transportierende Polymerschicht (HIL 2) aufgebracht ist.

15

10

20

25

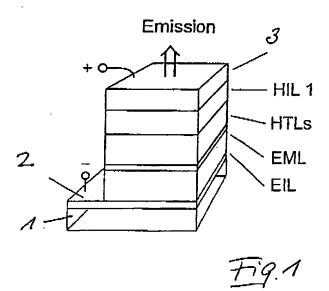
30

#### **Abstract**

The invention relates to an electric component constructed with organic layers and comprising a layer consisting of a hydrophobic, linear or two-dimensional polycyclic aromatic with between 3 and 12 ring structures, including phthalocyanines containing metal or devoid of metal, which have —H and/or —F, alkyl groups, aryl groups and/or fluorinated hydrocarbons as residual groups, said layer being used as a barrier layer or an encapsulation. This permits in particular hybrid constructions consisting of SM layers and polymer layers to be obtained. In addition a retroactive encapsulation of the component is no longer required.

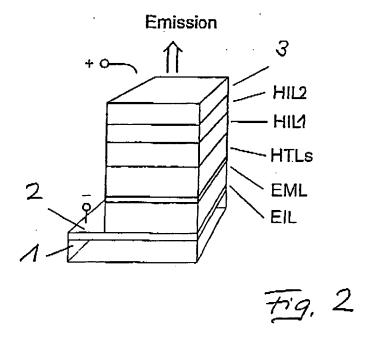
PCT/DE2004/001775

1/2



PCT/DE2004/001775

2/2



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/DE2004/001775

		ļi	PCT/DE2004/001775	
IPC 7	SIFICATION OF SUBJECT MATTER H05B33/14			
According	to International Patent Classification (IPC) or to both national cla	Schleshoo and IPC		
	S SEARCHED	SSIICEROII ENC II-O		
IPC 7	documentation searched (dassification system toflowed by dass H05B	fication symbols)		
Documenta	alion searched other than minimum documentation to the extent t	hal such documents are include	d in the fields searched	
1	data base consulted during the international search (name of dail ternal, CHEM ABS Data	a base and, where practical, se	aich Ierms used)	
C. DOCUMI	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the	e relevant passages	. Relevant to darm No	
X	US 5 674 597 A (HAMADA YUJI ET 7 October 1997 (1997-10-07) claim 4	TAL)	5,7-9	
X	US 5 698 740 A (OGAWA TADASHI 16 December 1997 (1997-12-16) column 16; figure 2	ET AL)	5,7-9	
A	EP 0 532 798 A (ASAHI CHEMICAL 24 March 1993 (1993-03-24) the whole document	IND)	1-10	
A	EP 0 857 007 A (TDK CORP) 5 August 1998 (1998-08-05) figure 1	·	1-10	
Further	er documents are tisled in the continuation of box C	X Patent lamily memb	ers are listed in annex	
Special cale	gones of cited documents			
A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		or pnorty date and not i	after the international filing date n conflict with the application but principle or theory underlying the	
E' earlier document but published on or after the international litting date.  'document which may throw doubts on priority claim(s) or which is deed to establish the publication date of another.		"X" document of particular relevance, the claimed invention clannol tic considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken atone		
catation or other special reason (as specified)  Of document reterring to an oral disclosure, use, exhibition or other integrits.		cannot be considered to document at combined w ments, such combination	avance, the claimed invention involve an inventive step when the inth one or more other such diccu- i being Obvious to a person statled	
later than	i published prior to the international filing date but in the priority date classified	m the art *&' document member of the same patient family		
ate of the actual completion of the international search		Date of mailing of the inte	malional search report	
	January 2005	21/01/2005		
ame and mai	uling address of the ISA European Patent Othice, P.B. 5818 Patentiquen 2 NL - 2280 HV Ryswijk	Authorized officer	-	
	Tel (+31-70) 340-2040. Tal 31 851 epu ni. Fax (+31-70) 340-3016	Friebel, F		

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent tamily members

International Application No PCT/DE2004/001775

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 5674597	A	07-10-1997	JP	3249297 B2	21-01-2002
	•••		JP	8031574 A	02-02-1996
US 5698740	A	16-12-1997	JP	3079909 B2	21-08-2000
		<b>y</b> =,:	JP	7145372 A	06-06-1995
			JP.	3169016 B2	21-05-2001
			JР	2000155432 A	06-06-2000
EP 0532798	Α	24-03-1993	EP	0532798 A1	24-03-1993
2. 4442.20		2. 00 1500	CA	2051758 A1	19-03-1993
			DE	69115272 D1	18-01-1996
			DE	69115272 T2	17-1 <b>0-</b> 1996
			ÜS	5281489 A	25-01-1994
EP 0857007	Α	05-08-1998	DE	69729931 D1	26-08-2004
	,,	30 00 1000	ΕP	0857007 A1	05-08-1998
			ÜS	6285039 B1	04-09-2001
			ĒΡ	1342769 A1	10-09-2003
			WO	9808360 A1	26-02-1998
			US	2002038867 A1	04-04-2002

Form: PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2004)

#### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE2004/001775

#### A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPC 7 H05B33/14

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

#### B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPC 7 HOSB

では、これのではでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、これのでは、こ

107 - 40 Min 10

Rechtrichierte, aber nicht zum Mindestprufstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorio*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
х	US 5 674 597 A (HAMADA YUJI ET AL) 7 October 1997 (1997-10-07) Anspruch 4	5,7-9
X	US 5 698 740 A (OGAWA TADASHI ET AL) 16 Dezember 1997 (1997-12-16) Spalte 16; zeichnung 2	5,7-9 ·
A	EP 0 532 798 A (ASAHI CHEMICAL IND) 24 März 1993 (1993-03-24) Das ganze Dokument	1–10
A	EP 0 857 007 A (TDK CORP) 5 August 1998 (1998-08-05) zeichnung 1	1–10

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

X Siehe Anhang Patentfamilie

- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:
- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anguschen ist
- E" älteres Dokument, das jedoch em am oder nach dem internationalen Amudeleiaum veröffentlicht worden ist
- 1. Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsansprach zweiselhaft excheinen zu lassen, durch die das Veröffentlichungsdanten einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Bemutzung, eine Ausziellung oder andem Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beenspruchten Priorizässdatum veröffentlicht worden ist
- T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Amneldedatum oder dem Princhätschaum veröffentlicht worden ist und mit der Amneldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundelingenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- "X" Ver

  lifentlichung von besonderer Bedentung; die beauspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Ver

  lifentlichung richt als neu oder auf erfinderischer T

  ligkeit ber

  nhend betrachtet werden
- "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfundung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit berehend hetrschiet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verhindung für einen Fachmann neheltegend ist.
- "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentiamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 14 Januar 2005	Absendedamm des internationalen Recherchenberichts 21.01.2005	
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde	Bevollmächtigter Bediensteter	
·	Friebel, F	
Telefaxnr.	Teleform.	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktonzoichen
PCT/DE2004/001775

Im Recherchenberich geführtes Patentdokur	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung	
US 5674 <b>59</b> 7	A	07-10-1997	JP JP	3249297 B2 8031574 A	21-01-2002 02-02-1996
US 5698740	A	16-12-1997	JP JP JP JP	3079909 B2 7145372 A 3169016 B2 2000155432 A	21-08-2000 06-06-1995 21-05-2001 06-06-2000
EP 0532798	A	24-03-1993	EP CA DE DE US	0532798 A1 2051758 A1 69115272 D1 69115272 T2 5281489 A	24-03-1993 19-03-1993 18-01-1996 17-10-1996 25-01-1994
EP 0857007	A	05-08-1998	DE EP US EP WO US	69729931 D1 0857007 A1 6285039 B1 1342769 A1 9808360 A1 2002038867 A1	26-08-2004 05-08-1998 04-09-2001 10-09-2003 26-02-1998 04-04-2002

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

# **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☑ BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☑ FADED TEXT OR DRAWING
☑ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
□ OTHER:

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.